

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17



REC'D 23 DEC 2003

WIPO

PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 102 55 294.0

Anmeldetag: 26. November 2002

Anmelder/Inhaber: BASF Aktiengesellschaft, Ludwigshafen/DE

Bezeichnung: Kontinuierliche Verfahren und Reaktor zur Herstellung von Alkylaminen

IPC: C 07 C 211/04

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 28. Oktober 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Schäfer

BASF Aktiengesellschaft

26. November 2002
B02/0592 IB/SF/ewe

5 **Kontinuierliche Verfahren und Reaktor zur Herstellung von Alkylaminen**

Die Erfindung betrifft einen Reaktor und Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators.

Insbesondere betrifft die Erfindung die Umsetzung von Methanol mit Ammoniak zur Herstellung von Methylaminen, vorzugsweise mit einer Selektivität für Dimethylamin (DMA), die höher ist als im thermodynamischen Gleichgewicht.

15 Die klassische Synthese von Monomethylamin (MMA), Dimethylamin (DMA) und Trimethylamin (TMA) erfolgt aus Ammoniak und Methanol in der Gasphase an amorphem nicht-formselektivem Silica-Alumina (Mischformen von Aluminium- und Siliziumoxid) bei Drücken von 15 bis 50 bar. Bei der Anwendung von höheren Temperaturen (350 bis
20 ca. 500 °C) stellt sich an diesen heterogenen Katalysatoren das thermodynamische Gleichgewicht ein oder wird näherungsweise erreicht, wenn die Verweilzeit im Reaktor bei gegebenem Druck und gegebener Zulauftemperatur hinreichend ist. Charakteristisch für diese "Gleichgewichtskatalysatoren" ist ein Anteil an Trimethylamin im Reaktorausstrag, bezogen auf die Summe von Monomethylamin, Dimethylamin und Trimethylamin, von 40
25 bis 60 Gewichtsprozent. Die Produktverteilung ist abhängig von der Temperatur und vom N/C-Verhältnis. Der Anteil von Trimethylamin am Produktgemisch lässt sich dabei reduzieren, wenn ein höherer Überschuss an Ammoniak (größeres N/C-Verhältnis) im Reaktionsgemisch enthalten ist. Wenn der Anteil an Monomethylamin und/oder Dimethylamin am gewünschten, nach der bekannten Aufarbeitung entnommenen
30 Produktgemisch größer ist als es dem Reaktorausstrag entspricht, müssen sowohl das überschüssige Trimethylamin als auch das nicht umgesetzte Ammoniak zurück in den Reaktor gefahren werden, wobei große Ammoniak- und Trimethylamin-Kreisläufe entstehen.

Der weltweite TMA-Verbrauch liegt bezogen auf die Gesamtmenge der Methylamine bei 10 bis 20 Gew.-%. Es ist wünschenswert, den Anteil an DMA und MMA ohne Rückführung des Reaktionsgemisches zu erhöhen. Dies gelingt durch die Verwendung von
5 formselektiven Zeolith-Katalysatoren wie Mordenit, ZK-5, Rho, Erionit, Chabazit, Ferrierit, Clinoptilolit bei Temperaturen von 250 bis 400 °C. Man erhält ein Produktgemisch, das vorwiegend aus Di- und Monomethylamin besteht und nur wenig Trimethylamin enthält. Gemäß EP-A-1 077 084 wird an einem formselektiven H-Mordenit-Katalysator, bei einem N/C-Verhältnis von 1,9, einem Reaktionsdruck von 20
10 bar, einer Temperatur von 320 °C, und einer Belastung GHSV von 2500 h⁻¹ nach 6 h ein Methanol-Umsatz von 99,2% gemessen, wobei das Produktgemisch ein MMA/DMA/TMA-Verhältnis von 32/52/16 Gew.-% besitzt. Wenn Dimethylamin den größten Teil am gewünschten, nach der bekannten Aufarbeitung entnommenen Produktgemisch bildet, lassen sich so die destillativ abzutrennenden und in den Reaktor
15 zurück zu fahrenden Mengen deutlich verringern im Vergleich zur Synthese an den nicht-formselektiven "Gleichgewichtskatalysatoren".

Aus Untersuchungen der Selektivität bezüglich Dimethylamin bei Verwendung von formselektiven Mordenit-Katalysatoren konnte festgestellt werden, dass bei einer
20 Temperatur von 320 °C und einem N/C-Verhältnis von 1,2 bis 2,0 der Anteil an DMA etwa 60 Gew.-% beträgt. Da die Menge an Ammoniak ohne Veränderung der Selektivität variiert werden kann, ist es wünschenswert, ein kleines N/C-Verhältnis einzustellen, da dann weniger Ammoniak destillativ abgetrennt und in den Reaktor oder einen zweiten Reaktor mit einem "Gleichgewichtskatalysator" zurück gefahren werden muss. Die
25 Verwendung von N/C-Verhältnissen kleiner als 0,8 sollte vermieden werden, da die Bildung von Nebenprodukten auftritt, die den Katalysator desaktivieren (Verkokung).

Die Standzeit des Zeolith-Katalysators ist umso besser, je geringer die Differenz zwischen Austrittstemperatur und Eintrittstemperatur des Reaktors ist, bevorzugt unter 60 °C. Zu
30 hohe Austrittstemperaturen bzw. "Hot-Spots" im Reaktor führen zu einer Abnahme des DMA- und einer Zunahme des TMA-Anteils im Produktgemisch. US 4,398,041 beschreibt ein Verfahren, bei dem der Reaktorzulauf durch überschüssiges Ammoniak verdünnt wird, um die Temperaturerhöhung in dem adiabatisch betriebenen Reaktor zu verringern. Der große Überschuss an Ammoniak (N/C-Verhältnis von $\geq 2,0$) ist mit dem erheblichen Nachteil

verbunden, dass große Mengen an Ammoniak destillativ abgetrennt und in den Reaktor zurück gefahren werden müssen.

Vorteilhafter für die Synthese von Methylaminen mit formselektiven Zeolith-Katalysatoren ist daher eine Reaktorfahrweise, bei der die durch die Reaktion erzeugte Wärme ganz oder teilweise durch in den Reaktor eingebaute Wärmeübertrager abgeführt wird, um die Differenz zwischen Austrittstemperatur und Eintrittstemperatur zu begrenzen. EP-B-0 763 519 beschreibt die Synthese von Methylaminen in einem oder mehreren Reaktoren, der/die in zwei oder mehrere Einzelbetten unterteilt ist/sind, die parallel oder in Serie angeordnet sind. Die Wärmeabfuhr erfolgt durch Kühlung des Reaktionsgemisches zwischen diesen Einzelbetten. Die Parallelanordnung von Einzelbetten, zwischen denen sich ein Wärme abführendes Medium befindet, wird beispielsweise mit Rohrbündelreaktoren realisiert.

Die Synthese von Methylaminen in Rohrbündelreaktoren ist auch in EP-A-0 593 086 beschrieben.

In Rohrbündelreaktoren befinden sich die Katalysatorausschüttung und das Reaktionsgemisch innerhalb der Rohre und das Kühlmedium außerhalb der Rohre. Bei der Synthese von Methylaminen beträgt der Druck im Reaktionsmedium i.a. 15 bis 25 bar. Bei einer Synthesetemperatur von 320 °C, beträgt der Druck des Kühlmediums ca. 100 bar, wenn mit siedendem Wasser gekühlt wird. Beim Rohrbündelreaktor muss daher der Auslegungsdruck der Reaktorwand etwa 100 bar betragen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung von Reaktoren und Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart von formselektiven Festbettkatalysatoren, die die Nachteile der bestehenden Verfahren vermeiden und insbesondere einen geringeren apparativen Aufwand erfordern.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem gekühlten Reaktor, bei dem der formselektive Festbettkatalysator im Reaktor in einem einzigen zusammenhängenden Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die Kühlmittel geleitet werden, um die Temperatur des Festbettes zu regeln.

Es wurde erfindungsgemäß gefunden, dass die Bauweise eines Festbettreaktors für die Synthese von Alkylaminen so gewählt werden kann, dass die Katalysatorschüttung ein einziges zusammenhängendes Bett bildet, in dem oder zwischen dem sich Rohre befinden, innerhalb derer sich das Kühlmedium befindet. Der Vorteil besteht darin, dass der Auslegungsdruck des Reaktormantels und der Reaktorhauben nur dem produktseitigen Druck entsprechen muss. Nur die Rohre, die das Kühlmedium enthalten, müssen auf den höheren Druck des Kühlmediums ausgelegt werden. Ebenfalls auf diesen Druck ausgelegt werden müssen die Vorrichtungen zum Verteilen, Sammeln und Abführen des Kühlmediums. Die Wanddicke des Reaktormantels kann dadurch wesentlich reduziert werden, was zu wesentlich geringeren Kosten und zu einem wesentlich geringeren Gewicht des Reaktors führt. Die Rohre für das Kühlmedium werden vorteilhaft in gewickelter Form eingesetzt, da bei dieser Auslegung Spannungen durch unterschiedliche Wärmeausdehnungen von Apparatewand und Kühlrohren praktisch nicht von Bedeutung sind. Besondere Vorteile ergeben sich aus einer Kombination dieser Reaktorauslegung mit formselektiven Katalysatoren.

Die Rohre können erfindungsgemäß jede geeignete oder gewünschte Geometrie aufweisen. Vorzugsweise haben die Rohre einen Querschnitt, der keine Ecken aufweist. Beispielsweise kann der Rohrquerschnitt kreisförmig oder ellipsenförmig sein. Der Rohrdurchmesser beträgt vorzugsweise 1 bis 5 cm.

Geeignete Reaktoren sind beispielsweise in EP-A-0 534 195 beschrieben. Sie können unter anderem zur Herstellung von Methylaminen aus Methanol und Ammoniak eingesetzt werden.

Durch die Rohre kann jedes beliebige geeignete Kühlmittel geführt werden, das eine effiziente Wärmeaufnahme und Ableitung sowie einen effizienten Transport des Kühlmediums erlaubt. Geeignete Kühlmittel sind beispielsweise Wasser, wässrige Lösungen, die z.B. Glykole enthalten können, oder Salzschnmelzen. Vorzugsweise erfolgt die Kühlung durch Siedewasserkühlung, so dass das Kühlmittel Wasser ist oder ganz überwiegend Wasser enthält.

Vorzugsweise beträgt der Druck im Kühlmittel 40 bis 220 bar, besonders bevorzugt 60 bis 150 bar, und der Druck im Katalysator-Festbett 10 bis 50 bar, besonders bevorzugt 15 bis

30 bar. Beispielsweise kann der produktseitige Druck im Reaktor etwa 25 bar betragen, während der Druck des Kühlmediums etwa 100 bar bei Siedewasserkühlung betragen kann.

- 5 Die Geometrie der Auslegung der Kühlmittelrohre im Reaktor kann beliebig gewählt werden, solange eine effiziente Wärmeabfuhr erreicht wird. Die Geometrie wird vorzugsweise so gewählt, dass sich im Katalysator-Festbett eine möglichst gleichmäßige Temperaturverteilung einstellt. Die Auslegung und der Betrieb der Kühlung werden vorzugsweise so gesteuert, dass die Differenz zwischen Austrittstemperatur und
10 Eintrittstemperatur des Reaktors unterhalb von 60 °C, besonders bevorzugt unterhalb von 35 °C liegt.

- Geeignete Reaktoren sind beispielsweise Linde-Isothermreaktoren oder vergleichbare Nickelreaktoren, wie sie auch in DE-A-34 14 717 und EP-A-0 534 195 beschrieben sind.
15 Sie werden üblicherweise isotherm betrieben.

Geeignete Dimensionierungen des Reaktors und der Rohre für das Kühlmittel sind dem Fachmann bekannt.

- 20 Die Erfindung betrifft auch einen Reaktor zur Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase zur Herstellung von Alkylaminen, enthaltend einen formselektiven Festbettkatalysator, bei dem der Festbettkatalysator im Reaktor in einem einzigen zusammenhängenden Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die ein Kühlmittel geleitet werden kann.

Der Reaktor wird vorzugsweise aus metallischen Werkstoffen wie Edelstahl aufgebaut. Die Wandstärken werden dabei so gewählt, dass die vorstehend angegebenen Druckverhältnisse möglich sind.

- 30 Im Reaktor bildet die Katalysatorschüttung ein einziges zusammenhängendes Bett. Dies bedeutet, dass keine einzelnen Bereiche oder Inseln der Katalysatorschüttung im Reaktor vorliegen, sondern die Schüttung insgesamt zusammenhängend ausgebildet ist.

- Die Aufgabe wird ferner erfindungsgemäß gelöst durch ein kontinuierliches Verfahren zur
35 Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der

Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, bei dem ein Teil der in den Reaktor eingeführten C₁₋₄-Alkanole, des Ammoniaks oder von Gemischen davon dem Katalysator-Festbett an mindestens einer Stelle zugeführt wird, an der ein bereits umgesetztes Reaktionsgemisch aus C₁₋₄-Alkanolen und Ammoniak vorliegt, das eine höhere Temperatur als die zugeführten C₁₋₄-Alkanole, Ammoniak oder Gemische davon aufweist.

Bei dieser Ausführungsform wird ein Teil des Reaktorzulauf-Gemisches oder ein Teil der zulaufenden Menge einzelner Komponenten anstatt am Eingang des Reaktors im Inneren des Reaktors, vorzugsweise in den ersten 2/3 der Katalysatorschüttung dem bereits teilweise umgesetzten Reaktionsgemisch zugesetzt. Die Temperatur der im Inneren zugesetzten Teilmengen ist kleiner als die Temperatur des bereits teilweise umgesetzten Reaktionsgemisches an der Stelle des Reaktors, an der die Zugabe erfolgt. Vorzugsweise werden 30 bis 90 %, besonders bevorzugt 50 bis 80 % der in den Reaktor einzuführenden Ausgangsstoffe anstatt am Eingang des Reaktors im Inneren des Reaktors zugesetzt. Die Temperatur der zugesetzten Ausgangsstoffe ist vorzugsweise um mindestens 40 °C, besonders bevorzugt um mindestens 70 °C niedriger als die an der Stelle der Zugabe herrschenden Temperatur des Katalysatorbetts. Die Zufuhr kann an einer oder mehreren Stellen entlang des Katalysatorbetts erfolgen. Vorzugsweise wird die Zufuhr so geregelt, dass sich eine weitgehend homogene Temperaturverteilung im gesamten Katalysatorbett einstellt. Die im Katalysatorbett zudosierte Menge der Ausgangsstoffe kann damit zur Aufnahme der frei werdenden Reaktionsenergie eingesetzt werden.

Weiterhin wird die Aufgabe erfindungsgemäß gelöst durch ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, bei dem ein Teil der C₁₋₄-Alkanole, des Ammoniaks oder von Gemischen davon in flüssiger Form so in den Reaktor eingeführt wird, dass eine Verdampfung auf dem Katalysator-Festbett stattfindet. Bei dieser Ausführungsform wird ein Teil des Reaktorzulauf-Gemisches oder ein Teil der zulaufenden Mengen einzelner Komponenten in flüssiger Form zugegeben. Die Flüssigkeiten verdampfen im Reaktor bzw. auf dem Festbettkatalysator. Vorzugsweise werden 5 bis 70 %, besonders bevorzugt 10 bis 50 % der insgesamt in den Reaktor einzuführenden Ausgangsstoffe in flüssiger Form zugeführt. Geeignete Vorrichtungen zum Zuführen der flüssigen Ausgangsstoffe sind bekannt. Durch

die Wärmeaufnahme an der Stelle der Zufuhr kann das Katalysator-Festbett entsprechend abgekühlt werden.

Die Aufgabe wird weiterhin erfindungsgemäß gelöst durch ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass dem Katalysator-Festbett zusätzlich ein Wärmeträgermedium zugeführt wird, das gegenüber den C₁₋₄-Alkanolen und Ammoniak und den Reaktionsprodukten inert ist und/oder die Aktivität und Selektivität des Katalysators nicht wesentlich beeinflusst. Dabei werden eine oder mehrere andere Komponenten dem Reaktorzulauf-Gemisch in einer Menge zugegeben, die geeignet ist, einen Teil der bei der Reaktion entstehenden Wärme aufzunehmen. Die zugegebene Komponente ist chemisch inert gegenüber den anderen Komponenten in der Synthese von Alkylaminen und/oder beeinflusst die Selektivität der Reaktion nicht. Sie beeinflusst vorzugsweise die Aktivität und Selektivität des Katalysators nicht wesentlich oder gar nicht. Beispielsweise wird als Wärmeträgermedium Wasser oder eine wässrige Lösung eingesetzt, die einen Wasseranteil von mindestens 50%, bevorzugt mindestens 80%, enthält.

Die Menge des zugegebenen Wärmeträgermediums richtet sich nach den praktischen Erfordernissen der Wärmeabführung im Reaktor. Aus dem Produktstrom kann das Wärmeträgermedium durch geeignete Verfahren wie Destillation in einfacher Weise abgetrennt werden.

Im erfindungsgemäßen Verfahren werden C₁₋₄-Alkanole, vorzugsweise C₁₋₂-Alkanole, insbesondere Methanol eingesetzt. Die Alkanole werden mit Ammoniak umgesetzt. Das N/C-Verhältnis, d.h. das Verhältnis der Anzahl von N-Atomen zu C-Atomen bei Verwendung von Methanol beträgt dabei vorzugsweise 0,8 bis 3,5, besonders bevorzugt 1,0 bis 2,5, insbesondere 1,2 bis 2,0. Hierdurch lässt sich erfindungsgemäß verhindern, dass größere Ammoniak-Rückführströme entstehen. Zudem kann die Bildung von Nebenprodukten verhindert werden, die den Katalysator desaktivieren können.

Erfindungsgemäß werden formselektive Katalysatoren, insbesondere Zeolithe, eingesetzt. Es können auch Silico-Alumino-Phosphate (SAPO) eingesetzt werden. Beispiele geeigneter formselektiver Katalysatoren sind Mordenit, ZK-5, Zeolith-Rho, Erionit,

Chabazit, Ferrierit, Clinoptilolit, SAPO-34, ZSM-5, ZSM-11, ZSM-21, ZSM-35, NU-85, Offretit, Zeolith-Y und weitere Katalysatoren, wie sie in Catalysis Today 37 (1997), Seiten 71 bis 102, speziell Tabelle 4 auf Seite 76 beschrieben sind. Auch die anderen in dieser Literaturstelle genannten formselektiven Katalysatoren können eingesetzt werden. Für
5 modifizierte Zeolith-Katalysatoren (Mordenite) kann auf US 4,485,261, US 4,578,516, US 4,582,936 und EP-A-0 342 999 verwiesen werden. Es handelt sich um modifizierte Zeolithe, die sich von den natürlichen oder synthetischen Mordeniten ableiten und chemisch modifiziert sind, um den Kationengehalt, insbesondere den Gehalt an Alkali- und Erdalkaliionen, einzustellen und nachfolgend dampfbehandelt sind. Für weitere geeignete
10 Mordenit-Katalysatoren kann auf EP-A-1 077 084 verwiesen werden. In dieser Schrift, wie auch in US 4,398,041, EP-A-0 593 086 und EP-A-0 763 519 sind geeignete Umsetzungsbedingungen angegeben. Beim Einsatz formselektiver Zeolith-Katalysatoren wird vorzugsweise bei einer Temperatur im Bereich von 200 bis 500 °C, besonders bevorzugt von 250 bis 400 °C gearbeitet. Der Reaktionsdruck beträgt vorzugsweise 5 bis
15 50 bar, besonders bevorzugt 10 bis 40 bar, insbesondere 15 bis 30 bar.

Die Katalysatorbelastung (GHSV) beträgt vorzugsweise 250 bis 5000 $\text{NI/l}_{\text{Kath}}$.

Der Katalysator wird erfindungsgemäß in Form eines Festbetts aus einer
20 Katalysatorschüttung eingesetzt. Dabei können die Katalysatorteilchen jede beliebige Geometrie aufweisen. Es handelt sich beispielsweise um Extrudate, Tabletten, Prills oder um Granulat. Der Katalysator kann vollständig aus Aktivkomponente bestehen oder 1 bis 60 Gew.-% Bindemittel enthalten. Übliche Bindemittel sind Oxide der Elemente Aluminium, Silicium, Titan und Zirkon sowie Tonen wie Montmorillonit und Kaolin.

Vorstehend sind unterschiedliche erfindungsgemäße Ausführungsformen beschrieben worden. Diese Ausführungsformen können auch miteinander kombiniert werden. Beispielsweise können die erfindungsgemäße Katalysatorauslegung und die Zudosierung von Ausgangsstoffen oder Kühlmedien an unterschiedlichen Stellen des Reaktors
30 miteinander kombiniert werden. Auch die Kombination der Zuführung von Ausgangsstoffen und Kühlmedien kann miteinander kombiniert werden.

Die in den Reaktor eingeführten C_{1-4} -Alkanole, Ammoniak oder Gemische davon können radial zur Längsachse des Reaktors geführt werden, z. B. zentripetal. Eine derartige
35 Ausführungsform ist beispielsweise in EP-A-0 534 195 beschrieben.

Bevorzugt wird eine Reaktionsfahrweise, bei der die Differenz zwischen Austrittstemperatur und Eintrittstemperatur unterhalb von 60 °C, bevorzugt unterhalb von 35 °C liegt, das N/C-Verhältnis im Bereich von 0,8 bis 3,5, bevorzugt von 1,0 bis 2,5, insbesondere 1,2 bis 2,0 beträgt und formselektive Zeolith-Katalysatoren eingesetzt werden.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren ist insbesondere die Herstellung von Methylaminen aus Methanol und Ammoniak mit einer hohen Selektivität für Dimethylamin möglich.

BASF Aktiengesellschaft

26. November 2002
B02/0592 IB/SF/ewe**Patentansprüche**

- 5
1. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem gekühlten Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass der formselektive Festbettkatalysator im Reaktor in einem
10 einzigen zusammenhängenden Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die Kühlmittel geleitet werden, um die Temperatur des Festbettes zu regeln.
- 15
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Kühlung durch Siedewasserkühlung erfolgt.
- 20
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck im Kühlmittel 40 bis 220 bar beträgt und der Druck im Katalysator-Festbett 10 bis 50 bar beträgt.
- 25
4. Reaktor zur Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase zur Herstellung von Alkylaminen, enthaltend einen formselektiven Festbettkatalysator, dadurch gekennzeichnet, dass der Festbettkatalysator im Reaktor in einem einzigen zusammenhängenden Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die ein Kühlmittel geleitet werden kann.
- 30
5. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass ein Teil der in den Reaktor eingeführten C₁₋₄-Alkanole, des Ammoniaks oder von Gemischen davon dem Katalysator-Festbett an mindestens einer Stelle
35 zugeführt wird, an der ein bereits umgesetztes Reaktionsgemisch aus C₁₋₄-Alkanolen und Ammoniak vorliegt, das eine höhere Temperatur als die zugeführten C₁₋₄-Alkanole, Ammoniak oder Gemische davon aufweist.
6. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines

formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass ein Teil der C₁₋₄-Alkanole, des Ammoniaks oder von Gemischen davon in flüssiger Form so in den Reaktor eingeführt wird, dass eine Verdampfung auf dem Katalysator-Festbett stattfindet.

5

7. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass dem Katalysator-Festbett zusätzlich ein Wärmeträgermedium zugeführt wird, das gegenüber den C₁₋₄-Alkanolen und Ammoniak und den Reaktionsprodukten inert ist und/oder die Aktivität und Selektivität des Katalysators nicht wesentlich beeinflusst.

10

8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass das Wärmeträgermedium Wasser ist oder enthält.

15

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 5 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass es in einem Reaktor gemäß Anspruch 4 durchgeführt wird.

- 20 10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass die in den Reaktor eingeführten C₁₋₄-Alkanole, Ammoniaks oder Gemische davon radial zur Längsachse des Reaktors geführt werden.

BASF Aktiengesellschaft

26. November 2002
B02/0592 IB/SF/ewe**Zusammenfassung**

5

Das kontinuierliche Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C₁₋₄-Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem gekühlten Reaktor, ist dadurch gekennzeichnet, dass der formselektive Festbettkatalysator im Reaktor in einem einzigen zusammenhängenden

10

Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die Kühlmittel geleitet werden, um die Temperatur des Festbettes zu regeln.